

전면 발광 유기 발광 소자용 반투명 금속의 전기적 및 광학적 특성

Electrical and Optical Properties of Semitransparent Metal Electrodes for Top-emission Organic Light-emitting Diodes

신은철¹, 안희철¹, 김태완^{1,a}

(Eun Chul Shin¹, Hui Chul An¹, and Tae Wan Kim^{1,a})

Abstract

Electrical and optical properties of semitransparent Ag and Al layer were studied, which are used for the electrodes in top-emission organic light-emitting diodes. Sheet resistance and transmittance of visible light through a thin layer were measured and analyzed. Several thin metal layers of Ag and Al were deposited onto a glass substrate up to a thickness of 50 nm using a thermal evaporation. Sheet resistance measurements show that a layer thickness is needed more than 15 nm and 20 nm for Ag and Al, respectively, when a proper sheet resistance is assumed to be less than 50 Ω /sq. From the measurements of transmittance of visible light through a thin-metal layer, metallic behavior was observed when the layer thickness is over 25 nm for both films. Thus, from a study of sheet resistance and transmittance of visible light, a minimum proper thickness of semitransparent metal layer is 20 nm and 25 nm for Ag and Al, respectively.

Key Words : Organic light-emitting diodes, Top emission, Transmittance, Sheet resistance

1. 서론

차세대 표시 소자인 유기 발광 소자(OLED)는 자발광원으로서 타 표시 소자보다 두께가 얇고, 밝기 변화에도 동일한 색상을 유지하는 면발광 소자이다. 또한 응답 속도가 빠르며, 고효율과 고해상도로 자연의 순색을 표현할 수 있는 소자이기도 하다[1]. 한편, 낮은 소비 전력과 높은 해상도를 갖는 표시 소자를 구현하기 위해서는 각 픽셀을 제어할 수 있는 TFT(thin-film transistors)가 필요하다[2].

유기 발광 소자의 발광 방식에는 배면 발광 방식과 전면 발광 방식의 두 가지가 있는데, 배면 발광 방식은 기판 아래로 빛을 내보내기 때문에 TFT 회로의 영향을 받아 개구율이 제한적이다[3]. 그리고 개구율을 고려하여 일정 이상의 휘도를 내

고자 할 때는, 그에 따른 전기 에너지를 추가로 공급하여야 하기 때문에 소자의 열화로 인해 수명이 감소된다. 반면에 전면 발광 방식은 기판의 반대 방향으로 빛을 내보내기 때문에, TFT의 수가 증가하여도 개구율에 영향을 받지 않는 장점이 있다. 이에 따라서 마이크로 표시 소자를 구현할 수 있으며, 수명의 증가, 소비 전력의 감소 및 높은 해상도를 갖는 표시 소자를 제작할 수 있다. 전면 발광 방식의 기판쪽에는 반사형 전극, 그리고 반대편에는 반투명의 전극이 필요하다. 반사형 전극은 가시광선 영역에서 반사도가 높아야 하고, 반투명 전극은 광투과도가 좋아야 한다. 그러나 금속의 박막 두께를 얇게 할수록 광투과도는 좋아지나 면저항이 높아져 부도체에 가까워진다. 반대로 금속의 박막 두께를 두껍게 할수록 면저항 값이 줄어들어 도체의 성질을 나타내는 반면에, 광투과도는 현저히 낮아진다[2]. 반투명 전극으로는 가시광선에 대하여 반투명하면서 전도성이 높은 재료가 필요하지만, 이러한 특성을 만족시키는 전극의 개발이 어렵다. 유기물 위에 ITO 등을 스퍼터링으로 증착시키는

1. 홍익대학교 정보디스플레이공학부
(서울시 마포구 상수동 72-1)

a. Corresponding Author : taekim@hongik.ac.kr
접수일자 : 2008. 8. 19
심사완료 : 2008. 9. 19

방법이 있으나, 이 방법 또한 유기 박막을 손상시켜 효율 및 수명을 저하시킨다. 이러한 점을 해결하기 위해서 열증착으로 Ca/Ag, Mg:Ag, LiF/Al/Ag 등과 같은 구조로 제작하며, 적절한 박막 두께를 찾는 연구가 진행 중에 있다[4-6].

본 연구에서는 반투명 전극의 기본이 되는 금속 재료 중에서 Ag와 Al의 박막 두께에 따른 전기적 및 광학적 특성을 살펴보았다.

2. 실험

유리 기판에 Ag와 Al의 금속 물질을 증착하기 위해 두께가 1 mm인 유리 기판을 20 mm×20 mm의 크기로 자른 후, 클로로포름(CHCl₃)으로 50 °C에서 약 20분 정도 초음파 세척을 하였다. 그 후 이 기판을 과산화수소수, 암모니아수와 증류수를 부피비로 1 : 1 : 5의 비율로 섞은 용액 속에 넣고 50 °C에서 약 20분간 초음파 세척을 하였다. 마지막으로 증류수 내에서 약 20분 정도 초음파 세척을 한 후, 질소 기체로 건조시켰다.

Ag와 Al의 금속 박막은 13 mm×13 mm 크기의 마스크를 이용하여 유리 기판에 두께를 변화시키면서 증착하였다. Ag는 5 nm부터 40 nm까지 두께를 변화시켜 제작하였으며, Al은 5 nm부터 50 nm까지 변화시켰다. 금속 박막의 증착시 압력은 5×10⁻⁶ Torr였으며, 증착 속도는 1 Å/s로 유지하였다. 알파 스텝(α step 200)을 이용하여 박막 두께를 측정하였고, 금속 박막의 광투과도는 Agilent 8453 UV-Visible Spectrophotometer를 이용하여 측정하였다.

Ag와 Al 금속 박막의 면저항은 CMT-SR1000를 이용하여 측정하였다. 면저항 측정은 그림 1에서와 같이 안쪽의 두 탐침에는 전압계를 연결하고, 바깥쪽 두 탐침에 전류를 공급하는 4단자법을 이용하였다. 전압 V와 전류 I, 그리고 면저항 R_s의 관계는 다음과 같다.

$$R_s = 2\pi s \frac{V}{I} \tag{1}$$

여기서, s는 탐침 간의 거리이며, 본 실험의 경우 s=1 mm로 하였다. 면저항을 측정함으로써, 물질의 부피 전기 비저항 ρ를 계산할 수 있으며, 이 때 관계식은 다음과 같다.

$$\rho = R_s d \tag{2}$$

여기서, d는 박막의 두께이다.

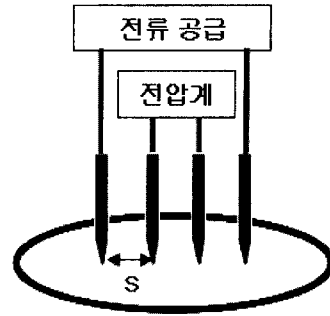


그림 1. 면저항 측정을 위한 장치도.

Fig. 1. Schematics for measuring a sheet resistance.

3. 결과 및 고찰

그림 2는 Ag와 Al의 박막 두께 변화에 따른 면저항을 나타내는 그래프이다. Ag 박막의 두께는 5 nm에서부터 40 nm까지, 그리고 Al 박막의 두께는 5 nm에서부터 50 nm까지 변화시켰다. 박막 두께가 증가함에 따라 면저항의 값이 지수적으로 감소하는 경향을 보이고 있으며, 박막의 두께가 10 nm 이하의 경우, 면저항 값이 매우 커서 반투명 전극으로 부적절함을 알 수 있었다. 박막이 두꺼워질수록 면저항이 감소하는 이유는 금속 원자들 사이에 금속 결합의 비율이 증가하기 때문으로 판단된다. 금속 박막의 두께가 15 nm일 때, Ag와 Al의 면저항은 각각 약 40 Ω/sq와 70 Ω/sq이다. 또한 Ag

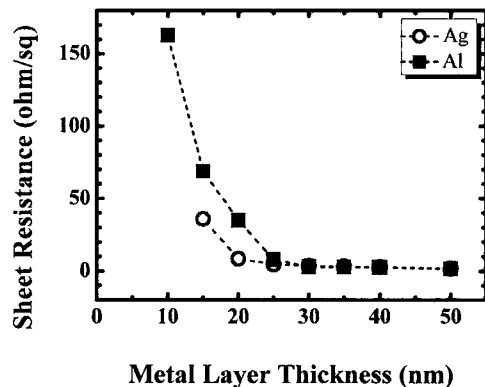


그림 2. Ag와 Al 박막의 두께 변화에 따른 면저항.
Fig. 2. Sheet resistance of Ag and Al layer as a function of layer thickness.

박막의 면저항이 Al 박막의 면저항보다 작은 값을 보이는데, 이는 Ag의 비저항이 Al의 비저항보다 작기 때문에 나타는 현상이다. 전면 발광용 반투명 금속 전극으로 사용하기 위해서는 적절한 면저항과 적절한 광투과도가 필요하다. 적절한 면저항을 50 Ω/sq 이하로 볼 때, Ag는 15 nm 이상, 그리고 Al은 20 nm 이상이 되어야 함을 알 수 있다. 또한 식 (2)를 이용하여 얻은 Ag의 비저항 값은 약 $1.6 \times 10^{-6} \Omega \cdot \text{cm}$ 이고 Al의 비저항 값은 약 $2.6 \times 10^{-6} \Omega \cdot \text{cm}$ 인데, 이는 기존에 알고 있는 값과 오차 범위 내에서 일치한다[6].

이번에는 적절한 반투명 금속의 두께를 광학적 특성으로부터 얻기 위하여 가시광선 영역에서의 광투과도를 분석하였다. 그림 3(a)와 (b)는 각각 Ag와 Al의 박막 두께 변화에 따른 가시광선 영역에서의 광투과도를 보여주고 있다. 그림 3(a)에서 Ag 박막의 두께가 5 nm인 경우, 파장이 400 nm부터 증가함에 따라 광투과도가 약 550 nm까지 감소하다가 그 이상의 파장에서는 서서히 증가하는 모습을 보이고 있으며, 전반적으로 광투과도는 약 50 % 이상을 나타내고 있다. Ag 박막의 두께가 10 nm인 경우도, 앞에서와 마찬가지로 파장이 증가함에 따라 광투과도가 감소하다가 650 nm 이상에서 약간 증가하고 있다. 그러나 Ag의 박막 두께가 15 nm 이상부터는 파장이 증가함에 따라 측정 파장 범위 내에서 광투과도가 단조 감소함을 알 수 있다. 한편, 그림 3(b)는 Al 박막의 두께 변화에 따른 가시광선 영역에서의 광투과도이다. 박막의 두께가 20 nm 이하일 때의 광투과도는 거의 일정한 반면에, 그 이상의 두께에서는 파장이 증가함에 따라 광투과도가 Ag 박막에서와 같이 서서히 감소하고 있으며, 광투과도는 전반적으로 20 % 이하로 나타났다. 파장이 증가함에 따라 광투과도가 감소하는 비율은 Ag 박막이 Al 박막보다 비교적 큰 데, 이는 가시광선 영역에서 두 박막에서의 광반사도가 다르므로 인하여 생긴 현상으로 보인다. 매우 두꺼운 Ag와 Al의 광반사도를 가시광선 영역에서 보면, Ag의 반사도는 거의 98 %로 일정한 반면에, Al의 반사도는 400 nm 부근에서 약 94 %이고 700 nm 부근에서는 약 90 % 정도이며, 파장이 증가함에 따라 거의 선형적으로 광반사도가 감소한다[7].

금속 박막에서의 광투과도는 전기 전도도와 입사 광의 진동수(또는 파장)에 따른 광학적 침투 깊이(optical skin depth)의 영향을 받는다. 따라서, 그림 3의 파장에 따른 광투과도는 전기 전도 특성

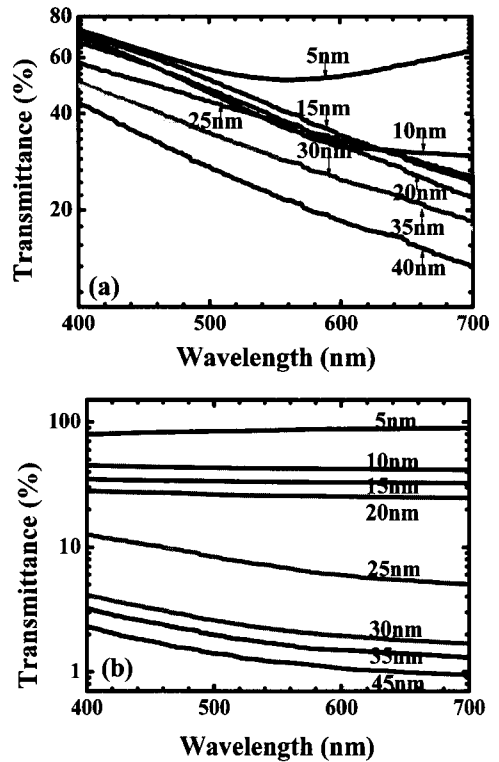


그림 3. (a) Ag와 (b) Al 박막의 두께 변화에 따른 가시광선 영역에서의 광투과도.

Fig. 3. Transmittance in the visible region with a variation of (a) Ag and (b) Al layer thickness.

을 통하여 이해할 수 있다. 금속 내의 자유 전자기 기여하는 복소 전기 전도도 σ^* 는 다음과 같이 주어지며, 이를 드루드(Drude) 모형이라고 한다.

$$\sigma^* = \frac{\sigma_0}{1 + i\omega\tau} = \sigma_1 + i\sigma_2 \quad (3)$$

여기서, σ_0 는 dc 전기 전도도, σ_1 과 σ_2 는 각각 실수부와 허수부 전기 전도도, i 는 허수 단위, $\omega (= 2\pi f)$ 는 각진동수, 그리고 τ 는 전자의 완화 시간이다. 빛의 경우 진동수 f 와 파장 λ 의 관계는 $f = c/\lambda$ 이며, 여기서 c 는 빛의 속력이다.

빛이 도체 표면에 수직하게 입사하면, 두 매질의 계면에서 굴절률 차이로 인하여 빛의 일부는 반사되고 일부는 도체 내로 침투되며, 침투되는 정

도는 다음과 같이 광학적 침투 깊이 δ 로 주어진다.

$$\delta = \sqrt{\frac{2}{\omega\mu\sigma_1}} \quad (4)$$

여기서, μ 는 매질의 투자율이다. 식 (3)에서 얻은 실수부 전기 전도도 σ_1 은 가시광선과 같은 고진동수 영역에서 ω^2 에 반비례함을 알 수 있다. 이를 식 (4)에 대입하면, 광학적 침투 깊이 δ 는 $\sqrt{\omega}$ 에 비례함을 알 수 있다. 박막에 침투한 빛의 세기 I 는 다음과 같이 거리에 따라 지수 함수적으로 감소한다.

$$I = I_0 e^{-\frac{d}{\delta}} \quad (5)$$

여기서, I_0 는 박막에 입사하기 직전의 빛의 세기이다. 고진동수 영역에서 δ 가 $\sqrt{\omega}$ 에 비례하므로, 식 (5)의 양변에 로그를 취하면 광투과도 T 는 다음과 같은 비례식으로 나타낼 수 있다.

$$\ln T \propto -\frac{d}{\sqrt{\omega}} \quad (6)$$

그림 4는 금속에서 예상되는 식 (6)의 관계를 확인하기 위하여, 그림 3을 이용하여 박막의 두께에 따른 광투과도를 $d/\sqrt{\omega}$ 로 나타낸 그림이다. x축은 $d/\sqrt{\omega}$ 로 나타내었고 y축은 로그 크기의 광투과도로 나타내었다. 그림 4(a)에서 Ag의 박막 두께가 25 nm 이상인 경우 광투과도의 변화가 선형으로 감소하며, 감소하는 직선의 기울기가 동일함을 알 수 있다. 따라서, 이는 식 (6)에서 예상한 바와 같이 동일한 메커니즘에 의해 광투과가 이루어짐을 알 수 있으며, 금속의 특성에 의한 현상으로 판단된다. Ag의 박막 두께가 20 nm 이하인 경우, 기울기의 변화가 비선형적으로 변하는 것은 그림 2의 결과와 비교해볼 때, 박막의 두께가 얇아 금속성이 미약하여 생긴 것으로 판단된다. 그림 4(b)는 Al 박막의 두께에 따른 특성이며, Ag의 박막의 경우와 마찬가지로 박막의 두께가 25 nm 이상일 때 드루드 모형을 만족하는 금속의 특성을 보이고 있다. 이와 같이 면저항과 가시광선

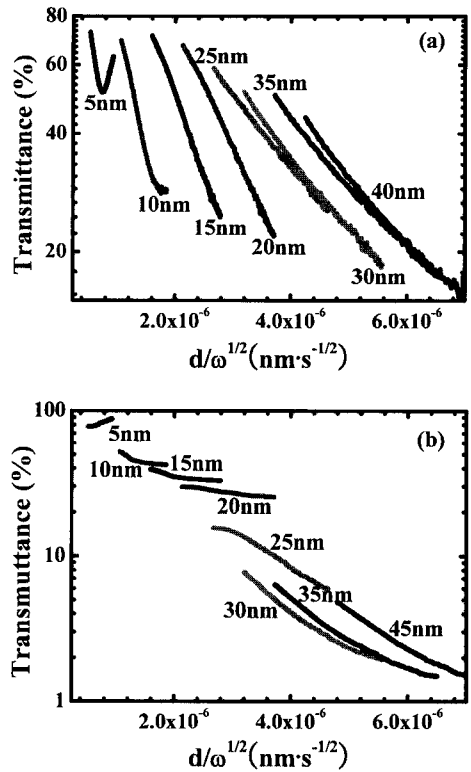


그림 4. 그림 3을 이용하여 x축은 $d/\sqrt{\omega}$ 로 하고, y축은 로그 크기의 광투과도로 나타낸 그림; (a)는 Ag 박막 그리고 (b)는 Al 박막.

Fig. 4. Log scale of transmittance as a function of $d/\sqrt{\omega}$ for several thicknesses of (a) Ag and (b) Al layer.

영역의 광투과도를 분석한 결과, 전면 발광 소자용 반투명 전극으로 사용하기 위한 최소 두께는 Ag의 경우 20 nm, 그리고 Al의 경우 25 nm가 되어야 함을 알 수 있다.

4. 결론

본 연구에서는 유기 발광 소자용 반투명 전극의 기본이 되는 Ag와 Al의 적절한 두께를 얻기 위하여 면저항과 가시광선 영역에서의 광투과도를 연구하였다. 이의 전기적 및 광학적 특성을 분석한 결과는 다음과 같다. 반투명 전극으로 사용하기 위한 면저항을 50 Ω/sq 이하라고 볼 때, Ag는 15 nm 이상, 그리고 Al은 20 nm 이상이 되어야 함을

알 수 있었다. 또한 가시광선 영역에서의 광투과도로부터 적절한 두께를 결정하기 위하여 얇은 박막의 금속성 여부를 분석하였다. Ag와 Al 박막의 두께가 25 nm 이상이 되면, 광투과도가 금속 내의 자유 전자의 특성을 만족하는 금속성을 나타냄을 알 수 있었다. 따라서, 면저항과 가시광선 영역의 광투과도로부터 전면 발광 소자에 사용하기 위한 반투명 금속 전극의 최소 두께는 Ag의 경우 20 nm, 그리고 Al의 경우 25 nm가 되어야 함을 알 수 있었다. 이러한 연구 결과를 바탕으로 전면 발광 유기 소자를 제작하여 이의 특성을 분석하고 있다.

감사의 글

이 논문은 2006학년도 홍익대학교 학술연구진흥비에 의하여 지원되었음.

참고 문헌

- [1] C. W. Tang and S. A. VanSlyke, "Organic electroluminescent diodes", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 51, No. 12, p. 913, 1987.
- [2] E. F. Schubert, N. E. J. Hunt, M. Micovic, R. J. Malik, D. L. Sivco, A. Y. Cho, and G. J. Zydzik, "Highly efficient light-emitting diodes with microcavities", *Science*, Vol. 265, No. 5174, p. 943, 1994.
- [3] R. B. Prode, C. J. Lee, D. G. Moon, and J. I. Han, "Transparent conducting metal electrode for top emission organic light-emitting devices: Ca-Ag double layer", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 84, p. 4614, 2004.
- [4] S. Han, X. Feng, Z. H. Lu, D. Johnson, and R. Wood, "Transparent-cathode for top-emission organic light-emitting diodes", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 82, p. 2715, 2003.
- [5] B. J. Chen, X. W. Sun, and S. C. Tan, "Transparent organic light-emitting devices with LiF/Mg:Ag cathode", *Optics Express.*, Vol. 13, p. 937, 2005.
- [6] T.-F. Guo, F.-S. Yang, Z.-J. Tsai, G.-W. Feng, T.-C. Wen, S.-N. Hsieh, C.-T. Chung, and C.-I. Wu, "High-brightness top-emissive polymer light-emitting diodes utilizing organic oxide/Al/Ag composite cathode", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 89, p. 051103, 2006.
- [7] 조재홍, 장수, 황보창권, 조두진, "광학", 두양사, p. 165, 2002.